

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-277188

(43)Date of publication of application : 12.10.1999

(51)Int.Cl. B22D 11/06  
B22D 11/10  
C22C 1/02  
C22C 1/02  
C22C 33/04  
H01F 1/06  
H01F 1/08  
// B22F 1/00  
C22C 38/00

(21)Application number : 10-082262

(71)Applicant : SEIKO EPSON CORP

(22)Date of filing : 27.03.1998

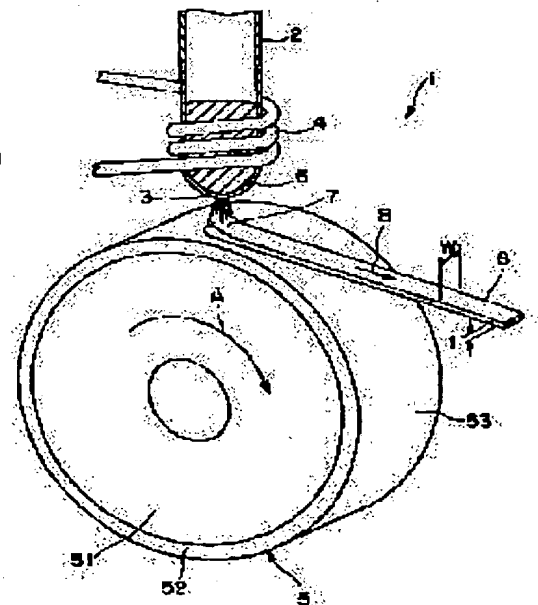
(72)Inventor : ARAI SEI

## (54) PRODUCTION OF MAGNETIC MATERIAL, AND MAGNETIC MATERIAL AND BOND MAGNET

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a producing method of a magnetic material with high magnetic characteristic and excellent corrosion resistance, and magnetic material and a bond magnet.

**SOLUTION:** A quenched strip producing apparatus 1 is provided with a cylindrical body 2, a coil 4 for heating and a cooling roll 5 to rotate against the cylindrical body 2. At the lower end of the cylindrical body 2, a nozzle 3 for injecting molten metal 6 of magnetic material is formed. The molten metal 6 is injected from the nozzle 3 in inert gas (atmospheric gas) such as helium gas, and is made to collide against the circumferential surface 53 of the rotating cooling roll 5 and quenched to be a quenched strip 8. In such a case, flow of atmospheric gas caused by rotation of the cooling roll 5 is developed. This quenched strip 8 is produced under such condition that Reynold's number becomes  $\leq 1000$  at a position near a paddle 7 of the gas flow.



[Date of request for examination]

18.11.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The manufacture method of the magnet material which injects a molten metal of a magnet material from a nozzle, make collide with a peripheral surface of a cooling roller which is rotating to said nozzle, and carries out cooling solidification in a controlled atmosphere, is the manufacture method of a magnet material of manufacturing a thin band-like magnet material, and is characterized by to make or less into 1000 the Reynolds number in a part which collided said molten metal of a gas stream which originates in a revolution of said cooling roller and is generated.

[Claim 2] A manufacture method of a magnet material according to claim 1 that peripheral velocity of said cooling roller is 1-60m/second.

[Claim 3] A manufacture method of a magnet material according to claim 1 or 2 that the maximum eccentricity of a cooling roller peripheral surface accompanying a revolution of said cooling roller is 2 double less or equal of average thickness of a thin band-like magnet material obtained.

[Claim 4] Said controlled atmosphere is the manufacture method of a magnet material according to claim 1 to 3 which is inert gas.

[Claim 5] Said inert gas is the manufacture method of a magnet material according to claim 4 which is gaseous helium.

[Claim 6] Said magnet material is the manufacture method of a magnet material according to claim 1 to 5 which is an alloy containing R (however, at least one sort in rare earth elements with which R contains Y).

[Claim 7] Said magnet material is the manufacture method of a magnet material according to claim 1 to 5 which is an alloy containing R (however, at least one sort in rare earth elements with which R contains Y), and TM (however, TM, at least one sort in transition metals) and B.

[Claim 8] A thin band-like magnet material characterized by being manufactured by the manufacture method of a magnet material according to claim 1 to 7.

[Claim 9] A thin band-like magnet material according to claim 8 whose rate of area which huge 2000-micrometer two or more dimples occupy [ area ] in the contact surface with said cooling roller is 8% or less.

[Claim 10] A thin band-like magnet material according to claim 8 or 9 whose diameter [ in / on the contact surface with said cooling roller and / in area / portions other than huge 2000 micrometer two or more dimples ] of average crystal grain is 50nm or less.

[Claim 11] A magnet material of the shape of powder characterized by having ground a magnet material according to claim 8 to 10, and supposing that it is powdered.

[Claim 12] A bond magnet characterized by coming to join a magnet material of the shape of powder according to claim 11 together by joint resin.

[Claim 13] A bond magnet according to claim 12 whose content of a magnet material of the shape of said powder is 82 - 99.5wt%.

[Claim 14] Coercive force  $iH_c$  A bond magnet according to claim 12 or 13 which is 0.35 or more MA/m.

[Claim 15] A magnetic energy product (BH) max 50 kJ/m<sup>3</sup> A bond magnet according to claim 12 to 14 which it is above.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] This invention relates to the manufacture method, magnet material, and bond magnet of a magnet material.

[0002]

[Description of the Prior Art] Since the rare earth magnet material which consists of alloys containing rare earth elements as a magnet material has high magnetic properties, when used for a motor etc., it demonstrates high performance.

[0003] Such a magnet material is manufactured by the quenching method which used for example, the quenching thin band manufacturing installation. This manufacture method is as follows.

[0004] Fuse the magnet material (henceforth an "alloy") of a predetermined alloy presentation, inject the molten metal from a nozzle, and it is made to collide with the peripheral surface of the cooling roller which is rotating to a nozzle, and by making this peripheral surface contact, it quenches, an alloy is solidified and a thin band-like (the shape of a ribbon) alloy is formed continuously. As a result of calling this thin band-like alloy a quenching thin band and being solidified with a quick cooling rate, that macrostructure is in the condition that detailed polycrystals gathered, and demonstrates outstanding magnetic properties.

[0005] Here, since magnetic properties would fall if rare earth elements oxidize, it is [ rare earth elements ] easy and it oxidizes, manufacture of said quenching thin band was performed mainly in argon gas.

[0006] Therefore, although it originates in a revolution of a cooling roller and the gas stream of argon gas occurs This gas stream to the flank of a paddle (basin produced to the part to which the molten metal injected from = nozzle collided with the peripheral surface of a cooling roller) A surroundings lump, The part invades between the peripheral surface of a cooling roller, and the roll side (field in contact with the peripheral surface of a cooling roller) of a quenching thin band, and a huge dimple (huge crevice) arises in the roll side of a quenching thin band owing to this.

[0007] If this huge dimple arises, in a huge dimple portion, a poor contact with the peripheral surface of a cooling roller will arise by gaseous inclusion, a cooling rate will fall, and rapid coagulation will be barred. Therefore, by the part which the huge dimple produced, the diameter of crystal grain of an alloy makes it big and rough, and magnetic properties fall.

[0008] Therefore, lowering of magnetic properties is similarly seen for the permanent magnet manufactured using the quenching thin band containing the portion of such low magnetic properties, and corrosion resistance also falls.

[0009]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The object of this invention is to offer the manufacture method, magnet material, and bond magnet of the magnet material which high magnetic properties are acquired and is excellent in corrosion resistance.

[0010]

[Means for Solving the Problem] this invention person resulted in a header and this invention depending for a degree of generating of a huge dimple on the Reynolds number in near the paddle of a gas stream of a controlled atmosphere (part where a molten metal of a magnet material collided), as a result of changing various the monograph affairs and conducting a repeat experiment paying attention to generating of a huge

dimple to a roll side of a quenching thin band relating to manufacture conditions of a quenching thin band.  
[0011] That is, this invention is as being shown in following the (1) - (15).

[0012] (1) The manufacture method of the magnet material which injects a molten metal of a magnet material from a nozzle, make collide with a peripheral surface of a cooling roller which is rotating to said nozzle, and carries out cooling solidification in a controlled atmosphere, is the manufacture method of a magnet material of manufacturing a thin band-like magnet material, and is characterized by to make or less into 1000 the Reynolds number in a part which collided said molten metal of a gas stream which originates in a revolution of said cooling roller and is generated.

[0013] (2) A manufacture method of a magnet material given in the above (1) whose peripheral velocity of said cooling roller is 1-60m/second.

[0014] (3) The above (1) whose maximum eccentricity of a cooling roller peripheral surface accompanying a revolution of said cooling roller is 2 double less or equal of average thickness of a thin band-like magnet material obtained, or a manufacture method of a magnet material given in (2).

[0015] (4) Said controlled atmosphere is the manufacture method of a magnet material the above (1) which is inert gas thru/or given in either of (3).

[0016] (5) Said inert gas is the manufacture method of a magnet material given in the above (4) which is gaseous helium.

[0017] (6) Said magnet material is the manufacture method of a magnet material the above (1) which is an alloy containing R (however, at least one sort in rare earth elements with which R contains Y) thru/or given in either of (5).

[0018] (7) Said magnet material is the manufacture method of a magnet material the above (1) which is an alloy containing R (however, at least one sort in rare earth elements with which R contains Y), and TM (however, TM, at least one sort in transition metals) and B thru/or given in either of (5).

[0019] (8) A thin band-like magnet material characterized by being manufactured by the manufacture method of a magnet material the above (1) thru/or given in either of (7).

[0020] (9) A thin band-like magnet material given in the above (8) whose rate of area which huge 2000-micrometer two or more dimples occupy [ area ] in the contact surface with said cooling roller is 8% or less.

[0021] (10) The above (8) whose diameter [ in / on the contact surface with said cooling roller and / in area / portions other than huge 2000 micrometer two or more dimples ] of average crystal grain is 50nm or less, or a thin band-like magnet material given in (9).

[0022] (11) A magnet material of the shape of powder characterized by having ground the above (8) thru/or a magnet material given in either of (10), and supposing that it is powdered.

[0023] (12) A bond magnet characterized by coming to combine a magnet material of the shape of powder of a publication with the above (11) by joint resin.

[0024] (13) A bond magnet given in the above (12) whose content of a magnet material of the shape of said powder is 82 - 99.5wt%.

[0025] (14) Coercive force  $iH_c$  The above (12) which is 0.35 or more MA/m, or bond magnet given in (13).

[0026] (15) Magnetic energy product (BH) max 50 kJ/m<sup>3</sup> The above (12) which it is above thru/or bond magnet given in either of (14).

[0027]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the manufacture method, magnet material, and bond magnet of the magnet material of this invention are explained to details, referring to an accompanying drawing.

[0028] The perspective diagram showing the example of a configuration of the equipment (quenching thin band manufacturing installation) to which drawing 1 manufactures the magnet material of this invention by the single rolling method, and drawing 2 are the cross-section side elevations showing the condition near the collision part to the cooling roller of the molten metal in the equipment shown in drawing 1.

[0029] As shown in drawing 1, the quenching thin band manufacturing installation 1 is equipped with the barrel 2 which can contain a magnet material, and the cooling roller 5 which rotates in the direction of drawing Nakaya mark A to this barrel 2. The nozzle (orifice) 3 which injects the molten metal of a magnet material is formed in the soffit of a barrel 2.

[0030] Moreover, by arranging the coil 4 for heating at an about three nozzle [ of a barrel 2 ] periphery, and impressing a RF to this coil 4, the inside of a barrel 2 is heated (induction heating), and the magnet material in a barrel 2 is changed into a melting condition.

[0031] The cooling roller 5 consists of a base 51 and a surface layer 52 which forms a roll peripheral surface. It is desirable to consist of metallic materials with high thermal conductivity like copper or a copper system alloy, and, as for a surface layer 52, it is [ a base 51 ] desirable to consist of metallic materials with thermal conductivity lower than the metallic material which has thermal conductivity equivalent to a base 51, or a base 51. Thereby, the difference of the cooling rate by the side of the roll side 81 of the quenching thin band 8 and the free side (field of the side which does not contact a cooling roller 5) 82 can be made smaller, and equalization of the diameter of crystal grain can be attained.

[0032] Such a quenching thin band manufacturing installation 1 is installed in a chamber (not shown), and operates in the condition of having filled up with inert gas or other controlled atmospheres in this chamber. In order to prevent oxidation of the quenching thin band 8 especially, as for a controlled atmosphere, it is desirable that it is inert gas. As inert gas, although argon gas, gaseous helium, nitrogen gas, etc. are mentioned, for example, especially gaseous helium is desirable. The reason is mentioned later.

[0033] When it heats with a coil 4, it fuses and the molten metal 6 is injected from a nozzle 3, as it pays magnet ingredients in a barrel 2, and it is shown in drawing 2 by the quenching thin band manufacturing installation 1, after colliding with the peripheral surface 53 of a cooling roller 5 and forming a paddle (cold slug well) 7, it is cooled quickly, and it is solidified, a molten metal 6 being dragged by the peripheral surface 53 of the rotating cooling roller 5, and is formed continuously [ the quenching thin band 8 ] or intermittently. Thus, soon, the roll side 81 separates from a peripheral surface 53, and the formed quenching thin band 8 runs in the direction of arrow head B in drawing 1. In addition, a dotted line shows the coagulation interface 71 of a molten metal among drawing 2.

[0034] Although the suitable range changes with the presentation of an alloy molten metal, conditions of a peripheral surface 53, etc., as for the peripheral velocity of a cooling roller 5, it is desirable that it is 1–60m/second, and it is usually more desirable that it is 5–40m/second. If the peripheral velocity of a cooling roller 5 is too slow, the diameter of crystal grain will increase, if the peripheral velocity of a cooling roller 5 is too quick conversely, it will become amorphous and, in any case, magnetic properties will fall.

[0035] In manufacture of the quenching thin band using such a quenching thin band manufacturing installation 1, it originates in a revolution of a cooling roller 5, and the gas stream 10 of a controlled atmosphere occurs around a paddle 7 (part where the molten metal 6 collided with the peripheral surface 53). In this invention, the Reynolds number (Re) of this gas stream 10 is made or less into 1000, and it carries out to 900 or less preferably, and carries out to ten to about 700 more preferably.

[0036] By making the Reynolds number below into said upper limit, it is presumed that it will be in the condition that the gas stream (gas viscous flow) 10 of the paddle 7 circumference shows drawing 3, trespass of the gas stream of a between [ the peripheral surface 53 of a cooling roller 5 and the roll sides 81 of the quenching thin band 8 ] is controlled, and the formation of the huge dimple 9 to the roll side 81 is considered to be prevented or controlled. Thereby, it is cooled with a quick cooling rate, big and rough-ization of crystal grain is prevented, and, therefore, magnetic properties (flux density, coercive force, square shape nature, etc.) of the quenching thin band 8 improve.

[0037] On the other hand, if said Reynolds number exceeds said upper limit, the gas stream (gas viscous flow) 10 of the paddle 7 circumference will produce turbulence (eddy style), as shown in drawing 4, and it will invade between the peripheral surface 53 of a cooling roller 5, and the roll side 81 of the quenching thin band 8, and this will be considered that the huge dimple 9 is formed in the roll side 81 owing to. Since a poor contact with a peripheral surface 53 arises, heat transfer is checked by this and a cooling rate falls, in the portion of the huge dimple 9, big and rough-ization of crystal grain produces the quenching thin band 8, and magnetic properties (flux density, coercive force, square shape nature, etc.) fall.

[0038] When a bond magnet is manufactured using the magnet powder obtained from the portion of the huge dimple 9 of the quenching thin band 8, moreover, such magnet powder Although it is bad, therefore this bond magnet has a low mechanical strength and affinity (wettability of joint resin) with joint resin

becomes that in which thermal stability (thermal resistance) and corrosion resistance are inferior. Like this invention, when generating of the huge dimple 9 is controlled, such a problem is solved and the bond magnet which is excellent in thermal resistance and corrosion resistance with a high mechanical strength is obtained.

[0039] Next, the definition of the Reynolds number is explained.

[0040] The Reynolds number (Re) in this description is the value which took into consideration the width of face (width of face of a paddle 7) of the quenching thin band 8 as an objective representation size, and is expressed with a degree type (I).

[0041]

[Equation 1]

$$Re = \frac{v \cdot w}{\nu} \quad \dots \quad I$$

[0042] The width of face of the quenching thin band 8 (= paddle 7) which is the body with which  $v$  interrupts the rate of flow of a controlled atmosphere (gas stream 10) among a formula (I), and  $w$  interrupts a controlled atmosphere here, and  $\nu$  are the coefficients of kinematic viscosity of a controlled atmosphere. It can ask for  $\nu$  by flow visualization.

[0043] Furthermore, since ideal gas approximation of the controlled atmosphere is carried out, the Reynolds number (Re) can be expressed with a degree type (II).

[0044]

[Equation 2]

$$Re = \left[ \frac{v \cdot w \cdot P}{R \cdot T} \right] \cdot \left[ \frac{M}{\eta} \right] \quad \dots \quad II$$

[0045] Here, for the molecular weight of a controlled atmosphere, and  $\eta$ , the coefficient of viscosity of a controlled atmosphere and  $T$  are [  $M$  / the pressure [Pa] of a controlled atmosphere and  $R$  of the temperature [K] of a controlled atmosphere and  $P$  ] gas constants among a formula (II).

[0046] In addition, when a controlled atmosphere is inert gas, said Reynolds number changes according to the class of the gas. Even when other parameters are completely the same as for this, it is because  $M/\eta$  in a formula (II) differs. For example, when argon gas is compared with gaseous helium,  $M/\eta$  of argon gas is about 1800,  $M/\eta$  of gaseous helium is about 200 and  $M/\eta$  is overwhelmingly smaller [ gaseous helium ]. Therefore, it has the advantage of being easy to make the Reynolds number small, by using gaseous helium. If it puts in another way, when making the Reynolds number or less into 1000 by using gaseous helium as a controlled atmosphere, there is an advantage that the larger tolerance of other conditions can be taken (for example, set up  $v$ ,  $w$ , and  $P$  in a formula (II) more greatly).

[0047] By the way, in the quenching thin band manufacturing installation 1, a cooling roller 5 faces rotating, and as shown in drawing 5, some eccentricity (axial deflection) arises from the dimensional accuracy (roundness) of cooling roller 5 the very thing, the installation precision over the bearing of a cooling roller 5, etc. If this eccentricity is large, the front face and the coagulation interface 71 of a melting alloy in a paddle 7 vibrate, fluctuation will arise in the size (width of face  $w$ , thickness  $t$ ) of the obtained quenching thin band 8, or fluctuation will arise in the time amount to which the roll side 81 of the quenching thin band 8 touches the peripheral surface 53 of a cooling roller 5. Furthermore, the incidence rate of a huge dimple also increases. Consequently, the cooling rate of the quenching thin band 8 etc. is changed, and variation arises in magnetic properties. And as for the bond magnet using the magnet powder and it which were obtained from such a quenching thin band 8, magnetic properties fall.

[0048] In order to prevent such a thing, it is desirable to make maximum eccentricity  $\Delta R$  (to refer to drawing 5) of the peripheral surface 53 of the cooling roller 5 accompanying a revolution of a cooling roller 5 into 2 double less or equal of average thickness  $t$  of the quenching thin band 8 which can be obtained by this invention, considering as 1.5 or less times is more desirable, and considering as 1 or less time is still more desirable. Thereby, the magnetic properties of the obtained quenching thin band 8 can be made more

into homogeneity. And the magnetic properties of the bond magnet manufactured from this can be raised. Especially, in this invention, outstanding magnetic properties are demonstrated according to the synergistic effect of specifying such maximum eccentricity  $\Delta R$  and specifying the Reynolds number mentioned above.

[0049] Here, especially the lower limit of maximum eccentricity  $\Delta R$  is the limit of the precision of the bearing which supports the limit of the process tolerance of the peripheral surface 53 of a cooling roller 5, and a cooling roller 5 although not limited to 0.1 micrometers. It can consider as a degree.

[0050] In addition, maximum eccentricity  $\Delta R$  can be measured with precision sized vessels, such as for example, a laser displacement gage, an electrostatic displacement gage, and a precision gage.

[0051] As a magnet material in this invention, it is R (however, R). The alloy containing at least one sort in the rare earth elements containing Y, especially R (however, R). A rare earth magnet material like the alloy containing at least one sort in the rare earth elements containing Y, and TM (however, TM, at least one sort in transition metals) and B is mentioned, and the thing of a presentation of following [1] – [4] is desirable.

[0052] [1] What makes a fundamental component the rare earth elements which are mainly concerned with Sm, and the transition metals which are mainly concerned with Co (henceforth a Sm-Co system alloy).

[0053] [2] What makes a fundamental component the transition metals which are mainly concerned with R (however, at least one sort in the rare earth elements with which R contains Y), and Fe, and B (henceforth a R-Fe-B system alloy).

[0054] [3] What makes a fundamental component the rare earth elements which are mainly concerned with Sm, the transition metals which are mainly concerned with Fe, and the element between grids which is mainly concerned with N (henceforth a Sm-Fe-N system alloy).

[0055] [4] What makes a fundamental component transition metals, such as R (however, at least one sort in the rare earth elements with which R contains Y), and Fe, and has a magnetic phase on nano meter level (nano crystal magnet).

[0056] As a typical thing of a Sm-Co system alloy, SmCo<sub>5</sub> and Sm<sub>2</sub> TM<sub>17</sub> (however, TM, transition metals) are mentioned.

[0057] As a typical thing of a R-Fe-B system alloy, a Nd-Fe-B system alloy, a Pr-Fe-B system alloy, a Nd-Pr-Fe-B system alloy, a Ce-Nd-Fe-B system alloy, a Ce-Pr-Nd-Fe-B system alloy, the thing that replaced a part of Fe in these with other transition metals, such as Co and nickel, are mentioned.

[0058] It is Sm<sub>2</sub> Fe<sub>17</sub>N<sub>3</sub> which nitrided and produced Sm<sub>2</sub> Fe<sub>17</sub> alloy as a typical thing of a Sm-Fe-N system alloy. It is mentioned.

[0059] as said rare earth elements, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, and a misch metal mention -- having -- these -- one sort -- or two or more sorts can be included. moreover, Fe, Co, nickel, etc. mention as said transition metals -- having -- these -- one sort -- or two or more sorts can be included. Moreover, in order to raise magnetic properties, in a magnet material, B, aluminum, Cu, Ga, Si, Ti, V, Ta, Zr, Nb, Mo, Hf, Ag, Zn, P, germanium, etc. can also be contained if needed.

[0060] In the roll side 81, even if the huge dimple 9 does not exist or the quenching thin band (thin band-like magnet material) 8 of this invention obtained by the above manufacture methods exists, the rate of area is small. That is, in the roll side 81, the rate of area which the huge 2000-micrometer two or more dimples 9 occupy is 8% or less preferably, and area is 5% or less more preferably, and is 3% or less still more preferably.

[0061] Moreover, as for the quenching thin band 8, it is desirable that the diameter [ in / in area / portions other than 2000 micrometer huge two or more dimple 9 ] of average crystal grain is 50nm or less, and it is more desirable that it is 30nm or less. Thereby, outstanding magnetic properties are demonstrated.

[0062] Especially average thickness t of the quenching thin band 8 is 10–50 micrometers, although not limited. A degree is desirable and it is 15–40 micrometers. A degree is more desirable. When this average thickness t is too large, big and rough-ization of crystal grain may become remarkable, magnetic properties may deteriorate, and if too small, productivity will worsen.

[0063] By grinding the above quenching thin bands 8, the magnet material (magnet powder) of the shape of



powder of this invention is obtained.

[0064] Especially the method of grinding is not limited, for example, can be performed using various grinding equipments, such as a ball mill, a vibration mill, a jet mill, and a pin mill, and shredding equipment. In this case, grinding can also be performed in a non-oxidizing atmosphere like [ under a vacuum or a reduced pressure condition (for example,  $1 \times 10^{-1}$  –  $1 \times 10^{-6}$  Torr) or in inert gas, such as nitrogen gas argon gas, and gaseous helium, ], in order to prevent oxidation.

[0065] A different thing only not only in the thing of the same presentation which mixed the magnet powder of two or more sorts of presentations is sufficient as such magnet powder. For example, what mixed at least two sorts in the thing of a presentation of aforementioned [1] – [4] is mentioned. In this case, it can have the advantage of each magnet powder to mix simulataneously, and more excellent magnetic properties can be acquired easily.

[0066] Moreover, in the case of the thing for manufacture, especially the mean particle diameter of magnet powder is 0.5–60 micrometers about the bond magnet later mentioned although not limited. A degree is desirable and it is 1–40 micrometers. A degree is more desirable. Moreover, in order to obtain the good moldability at the time of shaping by a small amount of joint resin which is mentioned later, the particle size distribution of magnet powder has that desirable which is distributed to some extent (there is variation). The void content of the obtained bond magnet can be reduced by this, the mechanical strength of a bond magnet can be raised more, and magnetic properties can be improved further.

[0067] In addition, the mean particle diameter may differ for every presentation of different magnet powder case [ powder ] and mixed although the magnet powder of two or more sorts of presentations was mixed. Moreover, what is necessary is to just be manufactured by the method of different this invention which at least one sort in the magnet powder of two or more sorts of presentations mentioned above in the case of such mixed powder.

[0068] Moreover, the magnet material of the shape of powder of this invention is not limited to what is used for manufacture of a bond magnet, for example, may be used for manufacture of a sintered magnet.

[0069] Next, the bond magnet of this invention is explained.

[0070] The bond magnet of this invention comes to join the above-mentioned magnet powder together by joint resin.

[0071] As joint resin (binder), any of thermoplastics and thermosetting resin are sufficient.

[0072] As thermoplastics, for example A polyamide (example: nylon 6, Nylon 46, Nylon 66, Nylon 610, Nylon 612, Nylon 11, Nylon 12, Nylon 612, nylon 6 –66), Liquid crystal polymers, such as thermoplastic polyimide and aromatic polyester, polyphenylene oxide, Polyolefines, such as polyphenylene sulfide, polyethylene, polypropylene, and an ethylene–vinylacetate copolymer, Denaturation polyolefine, a polycarbonate, polymethylmethacrylate, Polyester, such as polyethylene terephthalate and polybutylene terephthalate, The copolymer which is mainly concerned with these, a blend object, a polymer alloy, etc. are mentioned, and a polyether, a polyether ether ketone, polyether imide, polyacetal, etc. can mix and use 1 of sorts of these, and two sorts or more.

[0073] Also among these, especially the moldability is excellent, and since the mechanical strength is high, that which is mainly concerned with a liquid crystal polymer and polyphenylene sulfide from the point of a polyamide and heat-resistant improvement is desirable. Moreover, these thermoplastics is excellent also in kneading nature with magnet powder.

[0074] Such thermoplastics has the advantage that selection wide range like what thought the moldability as important, and the thing which thought thermal resistance and a mechanical strength as important is attained by the class, copolymerization–ization, etc.

[0075] On the other hand, as thermosetting resin, various epoxy resins, such as a bisphenol mold, a novolak mold, and a naphthalene system, phenol resin, a urea resin, melamine resin, polyester (unsaturated polyester) resin, polyimide resin, silicone resin, polyurethane resin, etc. are mentioned, and 1 of sorts of these and two sorts or more can be mixed and used, for example.

[0076] From the point of especially the moldability being excellent also among these, and a mechanical strength being high and excelling in thermal resistance, an epoxy resin, phenol resin, polyimide resin, and

silicone resin are desirable, and especially an epoxy resin is desirable. Moreover, these thermosetting resin is excellent also in kneading nature with magnet powder, and the homogeneity of kneading.

[0077] In addition, the thing of a solid [ thing / liquefied ] (powdered) is sufficient as the thermosetting resin (un-hardening) used at a room temperature.

[0078] Such a bond magnet of this invention is manufactured as follows, for example. Magnet powder, joint resin, and the constituent for bond magnets (compound) that contains additives (an anti-oxidant, lubricant, etc.) if needed are manufactured, and it fabricates in a desired magnet configuration all over a magnetic field or a non-magnetic field by methods, such as compression molding, extrusion molding, and injection molding, using this constituent for bond magnets. When joint resin is thermosetting resin, it is hardened with heating etc. after shaping.

[0079] As for the content of the magnet powder in a bond magnet, it is desirable that it is about 82–99.5wt%, and it is more desirable that it is about 90–99wt%. Although the bond magnet was especially manufactured by compression molding, as for the content of magnet powder, to a case, it is desirable that it is about 93–99.5wt%, and it is more desirable to it that it is about 95–99wt%.

[0080] If improvement in magnetic properties (especially magnetic energy product) cannot be aimed at if there are too few contents of magnet powder, and there are too many contents of magnet powder, the content of joint resin will decrease relatively and a moldability will fall.

[0081] Such a bond magnet of this invention demonstrates outstanding magnetic properties from the property of the quenching thin band 8 used as the raw material mentioned above, the numerousness of the manufacture conditions of a bond magnet, and the contents of the magnet powder contained in a bond magnet, etc.

[0082] That is, the bond magnet of this invention is coercive force  $iH_c$ . 0.35 or more MA/m is 0.50 or more MA/m more preferably.

[0083] The bond magnet of this invention, especially the bond magnet fabricated all over the non-magnetic field are magnetic energy (product BH) max. They are 50 kJ/m<sup>3</sup> preferably. They are 70 kJ/m<sup>3</sup> more preferably above. It is above.

[0084] the configuration of the bond magnet of this invention, especially a size, etc. are limited -- not having -- for example, a configuration -- being related -- cylindrical and a prismatic form -- the thing of all configurations, such as cylindrical (the shape of a ring), circular, plate-like, and bow tabular, is possible, and the thing of all magnitude is possible also for the magnitude from a large-sized thing to a micro thing.

[0085]

[Example] Hereafter, the concrete example of this invention is explained.

[0086] (Example 1) The hardener ingot as which an alloy presentation is expressed in Nd<sub>13</sub>Fe<sub>8</sub>Al<sub>1</sub>Co<sub>6</sub> B5.5 (presentation A) was cast by using each metal and Fe-B alloy of Nd, Fe, and Co of 99.9% or more of purity as a raw material. About 15g sample was started from this ingot.

[0087] The quenching thin band manufacturing installation 1 of a configuration of being shown in drawing 1 was prepared, and said sample was put in in the quartz tube which prepared the nozzle (circular hole orifice) in the pars basilaris ossis occipitalis. After deaerating the inside of the chamber by which the quenching thin band manufacturing installation 1 is contained, inert gas (argon gas, gaseous helium) was introduced, and it considered as the desired temperature T and the ambient atmosphere of a pressure P.

[0088] Then, the ingot sample in a quartz tube was fused by high-frequency induction heating, this molten metal was injected by the differential pressure of the internal pressure of a quartz tube, and ambient pressure towards the peripheral surface of the cooling roller with a diameter [ of 200mm ], and a width of face of 20mm which rotates by 1500rpm (peripheral velocity : 15.7m/(second)), and the quenching thin band of the alloy of presentation A was obtained. In addition, the surface layer of a cooling roller was made into the copper (5mm in thickness) thing.

[0089] moreover, the place which measured maximum eccentricity  $\Delta R$  of the cooling roller peripheral surface by revolution of a cooling roller with the laser displacement gage --  $\Delta R=10\mu\text{m}$  it was .

[0090] Moreover, ambient temperature T was measured with the thermo sensor (thermocouple) set in the chamber at this time.

[0091] Various conditions, such as a diameter of an orifice and injection pressure (differential pressure), were changed, and the quenching thin band of seven samples A1–A7 shown in the following table 1 was manufactured. moreover,  $\Delta R=50\mu\text{m}$  it is ( $> 2t$ ) — except was exchanged for the same cooling roller and manufactured the quenching thin band of a sample A8 on the almost same conditions as a sample A6. It is as the Reynolds number of the gas stream of the controlled atmosphere near a paddle being shown in a table 1 about each sample.

[0092] In addition, the width of face  $w$  of each quenching thin band and thickness  $t$  were measured with the microscope in the point of measurement of five or more per one sample, and were taken as the value which averaged this, respectively.

[0093] Each numeric value about the quenching thin band of the produced samples A1–A8 is shown in the following table 1.

[0094] Moreover, about each quenching thin band, the roll side was observed with the scanning electron microscope (SEM), and image analysis was performed further. From the result of image analysis, the rate of area which the with a 2000- $\mu\text{m}$  area [ or more 2 ] huge dimple (only henceforth a “huge dimple”) to a roll side occupies was computed. The result is also collectively shown in a table 1.

[0095]

[A table 1]

試料 No.	雰囲気ガス種	雰囲気ガス温度 $T$ (°C)	雰囲気圧 $P$ (kPa)	急冷薄帯の幅 $w$ (mm)	急冷薄帯の厚さ $t$ ( $\mu\text{m}$ )	レイノルズ数 $Re$	巨大ディンプルの占める面積率 (%)	備考
A1	ヘリウム	25	53.3	0.9	26.3	84	0	本発明
A2	ヘリウム	19	88.0	2.0	30.8	308	0	本発明
A3	アルゴン	23	56.9	0.8	25.3	700	0	本発明
A4	アルゴン	20	48.0	1.2	27.7	885	2.5	本発明
A5	アルゴン	17	65.1	1.0	26.8	1000	5.0	本発明
A6	アルゴン	27	88.0	0.8	25.9	1082	8.7	比較例
A7	アルゴン	21	66.7	2.0	31.0	2050	15.3	比較例
A8	アルゴン	18	87.0	0.8	24.8	1080	9.5	比較例

[0096] As shown in a table 1, the rate of area which a huge dimple all occupies about the quenching thin band of the sample A1 whose Reynolds number is 1000 or less – A5 was 5% or less. Especially, when the value was still lower when the Reynolds number is 900 or less, and the Reynolds number was 700 or less, the huge dimple was not generated at all.

[0097] On the other hand, by the samples A6–A8 by which a Reynolds number exceeds 1000, the rate of area which a huge dimple occupies exceeded 8%. In this case, the rate of area to which a huge dimple occupies [ maximum eccentricity  $\Delta R$  of a cooling roller peripheral surface ] the large sample A8 compared with a sample A6 is increasing further.

[0098] Next, the diameter of average crystal grain in portions other than a huge dimple was measured by methods, such as an image processing, from the organization observation result by TEM about each quenching thin band of samples A1–A8. Moreover, magnetic properties (coercive force  $iH_c$  and magnetic energy (product  $BH$ ) max) were measured by VSM. These results are shown in the following table 2.

[0099]

[A table 2]

試料 No.	レイノルズ数 Re	巨大ディンプル の占める面積率 (%)	平均結晶粒径 (nm)	iHc (MA/m)	(BH) max (kJ/m <sup>3</sup> )	備 考
A1	84	0	19	0.90	132.0	本発明
A2	308	0	24	0.88	131.8	本発明
A3	700	0	22	0.86	137.8	本発明
A4	885	2.5	26	0.84	127.8	本発明
A5	1000	5.0	29	0.79	126.5	本発明
A6	1082	8.7	32	0.48	65.6	比較例
A7	2050	15.3	35	0.38	50.3	比較例
A8	1080	9.5	30	0.43	59.8	比較例

[0100] As shown in a table 2, high magnetic properties are acquired by each about the quenching thin band of the sample A1 whose Reynolds number is 1000 or less – A5. When the value is still higher especially when the Reynolds number is 900 or less, and the Reynolds number is 700 or less, coercive force is [ 0.85 or more MA/m and ] magnetic energy (product BH) max. 130 kJ/m<sup>3</sup> The very high value was indicated to be the above.

[0101] On the other hand, the samples A6–A8 in which the Reynolds number exceeds 1000 were what is inferior in magnetic properties compared with a sample A1 – A5. In this case, compared with a sample A6, as for the large sample A8, magnetic properties are falling [ maximum eccentricity  $\Delta R$  of a cooling roller peripheral surface ] further.

[0102] (Example 2) except for having used the sample which cast the ingot of the presentations B, C, and D shown in a table 3, and was started from these ingots -- an example 1 -- being the same (however,  $\Delta R=15\mu\text{m}$ ) -- it carried out and 11 sorts of quenching thin bands were manufactured.

[0103]

[A table 3]

組成B	Nd <sub>4.5</sub> Fe <sub>94.5</sub> Co <sub>7</sub> B <sub>10.5</sub>
組成C	Nd <sub>10</sub> Pr <sub>2.5</sub> Fe <sub>94.5</sub> Nb <sub>1</sub> B <sub>5.5</sub>
組成D	Nd <sub>0</sub> Fe <sub>94.5</sub> Ga <sub>0.5</sub> B <sub>0</sub>

[0104] The rate of area which a Reynolds number and a huge dimple occupy like the above about these was computed. The value is shown in the following table 4.

[0105] Moreover, the width of face w of each quenching thin band is within the limits of 0.7–2.5mm, and thickness is 20–35 micrometers. It was within the limits and the diameter of average crystal grain in portions other than a huge dimple was within the limits of 15–30nm.

[0106] In addition, HEARU gon gas was used for that to which, as for 400 or less thing, the Reynolds number exceeds gaseous helium, and the Reynolds number exceeds 400 as a controlled atmosphere as a controlled atmosphere.

[0107] Next, a grinder (RAIKAI machine) grinds each quenching thin band in inert gas. Mean particle diameter is 15 micrometers (presentation B). 20 micrometers (presentation C) 18 micrometers (presentation D) It considers as magnet powder. One sort in this magnet powder, or two sorts or more (combination is indicated in a table 5), Epoxy resin 1.9\*\*0.1wt%, hydrazine system antioxidant 0.15wt%, and stearate (lubricant) 0.05wt% were mixed, this mixture was fully kneaded (120 degree–Cx 10 minutes), and the constituent for bond magnets (compound) was produced.

[0108] Subsequently, this compound is ground, it supposes that it is granular, weighing capacity of this

granular object is carried out, it is filled up in the metal mold of press equipment, and they are the material temperature of 130 degrees C, and pressure 6 ton/cm<sup>2</sup>. Compression molding (inside of a non-magnetic field) was carried out, and the Plastic solid was acquired. Heat hardening of the epoxy resin was carried out after mold release, and the cylindrical bond magnet (samples B1-B22) with a diameter [ of 10mm ] x height of 7mm was obtained.

[0109] Here, two or more sorts of mixture (mixed powder) of the magnet powder used by samples B1-B11 is used for that for which samples B1-B11 used one sort of magnet powder, and samples B12-B22.

[0110] The content (in the case of mixed powder, it is the content of the sum total) of the magnet powder in the bond magnet of samples B1-B22 was 97.9 - 98.3wt%.

[0111] The magnetic properties (coercive force  $iH_c$  and magnetic energy (product  $BH$ ) max) of the obtained bond magnet were measured in maximum impression magnetic field 2 MA/m with the account fluxmeter of \*\*\*\*\*.

[0112] furthermore -- these bond magnets -- 60 degree-Cx95%RH -- the constant temperature by 500 hours -- the constant humidity trial was performed and corrosion resistance was investigated. This corrosion resistance distinguished the existence of generating of the rust in a bond magnet front face by viewing, and evaluated as a x mark what \*\* mark and generating of rust were notably accepted in in what O mark and generating of rust were accepted in a little in the thing without generating of rust.

[0113] About each bond magnet of samples B1-B22, magnetic properties and a corrosion resistance assessment result are shown in the following table 4 and a table 5, respectively. In addition, about each bond magnet of samples B1-B11, the rate of area which the Reynolds number at the time of quenching thin band manufacture and a huge dimple occupy is collectively shown in the following table 4.

[0114]

[A table 4]

試料 No.	組 成	レイノルズ数 Re	巨大ディンプル の占める面積率 (%)	$iH_c$ (MA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m <sup>3</sup> )	耐食性	備 考
B 1	B	72	0	0.42	75.1	○	本発明
B 2		355	0	0.39	73.6	○	本発明
B 3		860	2.3	0.38	71.5	○	本発明
B 4		1132	9.8	0.10	25.3	△~×	比較例
B 5	C	135	0	1.06	84.2	○	本発明
B 6		556	0	1.02	81.3	○	本発明
B 7		1325	12.6	0.71	45.1	×	比較例
B 8		2118	18.3	0.55	40.2	×	比較例
B 9	D	223	0	0.72	120.3	○	本発明
B 10		789	0.7	0.70	118.5	○	本発明
B 11		1229	10.5	0.33	60.1	×	比較例

[0115]

[A table 5]

試料 No.	組 成	磁石粉末の組み合わせ	i H <sub>c</sub> (MA/m)	(BH) max (kJ/m <sup>3</sup> )	耐食性	備 考
B 1 2	B + D	試料 No. B 1 + B 9	0. 5 7	1 0 1. 2	○	本発明
B 1 3	重 量 比 = 1 : 1	試料 No. B 2 + B 9	0. 5 4	1 0 0. 6	○	本発明
B 1 4		試料 No. B 3 + B 1 0	0. 5 0	9 8. 1	○	本発明
B 1 5		試料 No. B 4 + B 1 1	0. 2 0	3 8. 9	×	比較例
B 1 6	C + D	試料 No. B 5 + B 9	0. 8 7	1 0 7. 8	○	本発明
B 1 7	重 量 比 = 1 : 2	試料 No. B 6 + B 9	0. 8 4	1 0 6. 7	○	本発明
B 1 8		試料 No. B 5 + B 1 0	0. 8 6	1 0 5. 4	○	本発明
B 1 9		試料 No. B 7 + B 1 1	0. 5 3	4 9. 2	×	比較例
B 2 0	B + C + D	試料 No. B 1 + B 5 + B 9	0. 7 5	1 0 5. 8	○	本発明
B 2 1	重 量 比 = 1 : 1 : 1	試料 No. B 2 + B 6 + B 9	0. 7 1	1 0 3. 3	○	本発明
B 2 2		試料 No. B 4 + B 8 + B 1 1	0. 2 1	4 0. 5	×	比較例

[0116] As shown in a table 4 and a table 5, each of samples B1-B3, B5-B7, B9, B10, B12-B14, B16-B18, and bond magnets of this invention of B20 and B21 is more than coercive force iH<sub>c</sub> 0.35MA/m and magnetic energy (product BH) max. 50 kJ/m<sup>3</sup> Corrosion resistance is also excellent while having the magnetic properties which were excellent with the above.

[0117] The magnetic properties which were more excellent in especially the samples B12-B14 using mixed powder, B16-B18, and B20 and B21 are acquired.

[0118] On the other hand, sample B4 and the bond magnet of B8, B11, B15, B19, and B22 were those in which magnetic properties and corrosion resistance are inferior.

[0119]

[Effect of the Invention] As stated above, according to this invention, generating of a huge dimple can be controlled in a quenching thin band, equalization of magnetic properties can be attained, and the permanent magnet which therefore has magnetic properties and corrosion resistance excellent in the high mechanical strength can be offered. Moreover, such a magnet can be manufactured easily.

[0120] By making small especially the maximum eccentricity of a cooling roller peripheral surface, the variation in the magnetic properties of a quenching thin band can be prevented effectively, and a permanent magnet with more excellent magnetic properties can be offered.

[0121] Moreover, in this invention, such a magnet can be manufactured easily.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**DESCRIPTION OF DRAWINGS**

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the perspective diagram showing the example of a configuration of the equipment (quenching thin band manufacturing installation) which manufactures the magnet material of this invention.

[Drawing 2] It is the cross-section side elevation showing the condition near the collision part to the cooling roller of the molten metal in the equipment shown in drawing 1 .

[Drawing 3] It is the plan showing typically the condition of the gas stream (low Reynolds number) of the paddle circumference.

[Drawing 4] It is the plan showing typically the condition of the gas stream (high Reynolds number) of the paddle circumference.

[Drawing 5] It is the side elevation showing the maximum eccentricity of the cooling roller peripheral surface accompanying a revolution of a cooling roller.

[Description of Notations]

1 Quenching Thin Band Manufacturing Installation

2 Barrel

3 Nozzle

4 Coil

5 Cooling Roller

51 Base

52 Surface Layer

53 Peripheral Surface

6 Molten Metal

7 Paddle

71 Coagulation Interface

8 Quenching Thin Band

81 Roll Side

82 Free Side

9 Huge Dimple

10 Gas Stream

---

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-277188

(43) 公開日 平成11年(1999)10月12日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	F I
B 2 2 D 11/06	3 6 0	B 2 2 D 11/06 3 6 0 B
11/10	3 6 0	11/10 3 6 0 G
C 2 2 C 1/02	5 0 1	C 2 2 C 1/02 5 0 1 E
	5 0 3	5 0 3 H
33/04		33/04 Z

審査請求 未請求 請求項の数15 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平10-82262

(22) 出願日 平成10年(1998)3月27日

(71) 出願人 000002369

セイコーエプソン株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目4番1号

(72) 発明者 新井 聖

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコ

ーエプソン株式会社内

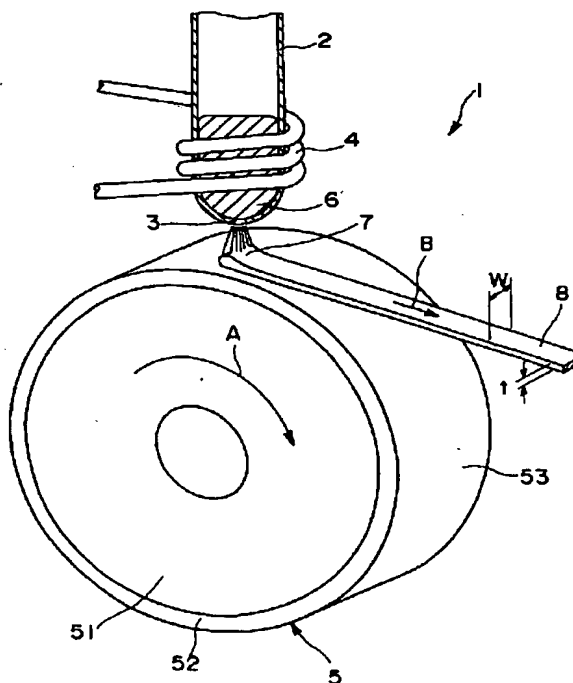
(74) 代理人 弁理士 鈴木 喜三郎 (外2名)

(54) 【発明の名称】 磁石材料の製造方法、磁石材料およびボンド磁石

(57) 【要約】

【課題】 高い磁気特性が得られ、耐食性に優れる磁石材料の製造方法、磁石材料およびボンド磁石を提供すること。

【解決手段】 急冷薄帯製造装置1は、筒体2と、加熱用のコイル4と、筒体2に対し回転する冷却ロール5とを備えている。筒体2の下端には、磁石材料の溶湯6を射出するノズル3が形成されている。ヘリウムガスのような不活性ガス（雰囲気ガス）中で、溶湯6をノズル3から射出し、回転する冷却ロール5の周面53に衝突させ、冷却固化して、急冷薄帯8を製造する。この場合、冷却ロール5の回転に起因して、雰囲気ガスのガス流が発生している。このガス流のパドル7付近におけるレイノルズ数が1000以下となるような条件で急冷薄帯8を製造する。





## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 雰囲気ガス中で、磁石材料の溶湯をノズルから射出し、前記ノズルに対し回転している冷却ロールの周面に衝突させ、冷却固化して、薄帯状の磁石材料を製造する磁石材料の製造方法であって、前記冷却ロールの回転に起因して発生するガス流の、前記溶湯が衝突した部位におけるレイノルズ数を 1000 以下とすることを特徴とする磁石材料の製造方法。

【請求項 2】 前記冷却ロールの周速度が、1～60m/秒である請求項 1 に記載の磁石材料の製造方法。

【請求項 3】 前記冷却ロールの回転に伴う冷却ロール周面の最大偏心量が、得られる薄帯状の磁石材料の平均厚さの 2 倍以下である請求項 1 または 2 に記載の磁石材料の製造方法。

【請求項 4】 前記雰囲気ガスは、不活性ガスである請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載の磁石材料の製造方法。

【請求項 5】 前記不活性ガスは、ヘリウムガスである請求項 4 に記載の磁石材料の製造方法。

【請求項 6】 前記磁石材料は、R（ただし、R は、Y を含む希土類元素のうちの少なくとも 1 種）を含む合金である請求項 1 ないし 5 のいずれかに記載の磁石材料の製造方法。

【請求項 7】 前記磁石材料は、R（ただし、R は、Y を含む希土類元素のうちの少なくとも 1 種）と TM（ただし、TM は、遷移金属のうちの少なくとも 1 種）と B を含む合金である請求項 1 ないし 5 のいずれかに記載の磁石材料の製造方法。

【請求項 8】 請求項 1 ないし 7 のいずれかに記載の磁石材料の製造方法により製造されたことを特徴とする薄帯状の磁石材料。

【請求項 9】 前記冷却ロールとの接触面において、面積が  $2000 \mu\text{m}^2$  以上の巨大ディンプルの占める面積率が 8% 以下である請求項 8 に記載の薄帯状の磁石材料。

【請求項 10】 前記冷却ロールとの接触面において、面積が  $2000 \mu\text{m}^2$  以上の巨大ディンプル以外の部分における平均結晶粒径が 50nm 以下である請求項 8 または 9 に記載の薄帯状の磁石材料。

【請求項 11】 請求項 8 ないし 10 のいずれかに記載の磁石材料を粉砕して粉末状としたことを特徴とする粉末状の磁石材料。

【請求項 12】 請求項 11 に記載の粉末状の磁石材料を結合樹脂で結合してなることを特徴とするボンド磁石。

【請求項 13】 前記粉末状の磁石材料の含有量が 82～99.5wt% である請求項 12 に記載のボンド磁石。

【請求項 14】 保磁力  $iH_c$  が 0.35MA/m 以上である請求項 12 または 13 に記載のボンド磁石。

【請求項 15】 磁気エネルギー積  $(BH)_{\text{max}}$  が 50 kJ/m

3 以上である請求項 12 ないし 14 のいずれかに記載のボンド磁石。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、磁石材料の製造方法、磁石材料およびボンド磁石に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】磁石材料として、希土類元素を含む合金で構成される希土類磁石材料は、高い磁気特性を有するため、モータ等に用いられた場合に、高性能を発揮する。

【0003】このような磁石材料は、例えば急冷薄帯製造装置を用いた急冷法により製造される。この製造方法は、次の通りである。

【0004】所定の合金組成の磁石材料（以下「合金」と言う）を溶融し、その溶湯をノズルから射出し、ノズルに対して回転している冷却ロールの周面に衝突させ、該周面と接触させることにより合金を急冷、凝固し、薄帯状（リボン状）の合金を連続的に形成する。この薄帯状の合金は、急冷薄帯と呼ばれ、速い冷却速度で凝固された結果、そのマクロ組織は、微細な多結晶が集合した状態となっており、優れた磁気特性を発揮する。

【0005】ここで、希土類元素は、酸化され易く、酸化されると磁気特性が低下するため、前記急冷薄帯の製造は、主としてアルゴンガス中で行われていた。

【0006】そのため、冷却ロールの回転に起因して、アルゴンガスのガス流が発生するが、このガス流がパドル（＝ノズルから射出された溶湯が冷却ロールの周面に衝突した部位に生じる湯だまり）の側部に回り込み、その一部が冷却ロールの周面と急冷薄帯のロール面（冷却ロールの周面と接触する面）との間に侵入し、これが原因で、急冷薄帯のロール面に巨大ディンプル（巨大な凹部）が生じる。

【0007】この巨大ディンプルが生じると、巨大ディンプル部分においては、気体の介在により冷却ロールの周面との接触不良が生じ、冷却速度が低下して、急速な凝固が妨げられる。そのため、巨大ディンプルが生じた部位では、合金の結晶粒径が粗大化し、磁気特性が低下する。

【0008】従って、このような低磁気特性の部分を含む急冷薄帯を用いて製造された永久磁石も、同様に、磁気特性の低下が見られ、また、耐食性も低下する。

## 【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、高い磁気特性が得られ、また、耐食性に優れる磁石材料の製造方法、磁石材料およびボンド磁石を提供することにある。

## 【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者は、急冷薄帯のロール面への巨大ディンプルの発生は、急冷薄帯の製造

条件に関連していることに着目し、その各条件を種々変更して繰り返し実験を行った結果、巨大ディンプルの発生程度は、雰囲気ガスのガス流のパドル付近（磁石材料の溶湯が衝突した部位）におけるレイノルズ数に依存していることを見出し、本発明に至った。

【0011】すなわち、本発明は、下記（１）～（１５）に示す通りである。

【0012】（１） 雰囲気ガス中で、磁石材料の溶湯をノズルから射出し、前記ノズルに対し回転している冷却ロールの周面に衝突させ、冷却固化して、薄帯状の磁石材料を製造する磁石材料の製造方法であって、前記冷却ロールの回転に起因して発生するガス流の、前記溶湯が衝突した部位におけるレイノルズ数を1000以下とすることを特徴とする磁石材料の製造方法。

【0013】（２） 前記冷却ロールの周速度が、1～60m/秒である上記（１）に記載の磁石材料の製造方法。

【0014】（３） 前記冷却ロールの回転に伴う冷却ロール周面の最大偏心量が、得られる薄帯状の磁石材料の平均厚さの2倍以下である上記（１）または（２）に記載の磁石材料の製造方法。

【0015】（４） 前記雰囲気ガスは、不活性ガスである上記（１）ないし（３）のいずれかに記載の磁石材料の製造方法。

【0016】（５） 前記不活性ガスは、ヘリウムガスである上記（４）に記載の磁石材料の製造方法。

【0017】（６） 前記磁石材料は、R（ただし、Rは、Yを含む希土類元素のうちの少なくとも1種）を含む合金である上記（１）ないし（５）のいずれかに記載の磁石材料の製造方法。

【0018】（７） 前記磁石材料は、R（ただし、Rは、Yを含む希土類元素のうちの少なくとも1種）とTM（ただし、TMは、遷移金属のうちの少なくとも1種）とBを含む合金である上記（１）ないし（５）のいずれかに記載の磁石材料の製造方法。

【0019】（８） 上記（１）ないし（７）のいずれかに記載の磁石材料の製造方法により製造されたことを特徴とする薄帯状の磁石材料。

【0020】（９） 前記冷却ロールとの接触面において、面積が2000 $\mu\text{m}^2$ 以上の巨大ディンプルの占める面積率が8%以下である上記（８）に記載の薄帯状の磁石材料。

【0021】（１０） 前記冷却ロールとの接触面において、面積が2000 $\mu\text{m}^2$ 以上の巨大ディンプル以外の部分における平均結晶粒径が50nm以下である上記

（８）または（９）に記載の薄帯状の磁石材料。

【0022】（１１） 上記（８）ないし（１０）のいずれかに記載の磁石材料を粉砕して粉末状としたことを特徴とする粉末状の磁石材料。

【0023】（１２） 上記（１１）に記載の粉末状の磁石

材料を結合樹脂で結合してなることを特徴とするボンド磁石。

【0024】（１３） 前記粉末状の磁石材料の含有量が82～99.5wt%である上記（１２）に記載のボンド磁石。

【0025】（１４） 保磁力*iHc*が0.35MA/m以上である上記（１２）または（１３）に記載のボンド磁石。

【0026】（１５） 磁気エネルギー積(BH)<sub>max</sub>が50kJ/m<sup>3</sup>以上である上記（１２）ないし（１４）のいずれかに記載のボンド磁石。

【0027】

【発明の実施の形態】以下、本発明の磁石材料の製造方法、磁石材料およびボンド磁石について、添付図面を参照しつつ詳細に説明する。

【0028】図1は、本発明の磁石材料を単ロール法により製造する装置（急冷薄帯製造装置）の構成例を示す斜視図、図2は、図1に示す装置における溶湯の冷却ロールへの衝突部位付近の状態を示す断面側面図である。

【0029】図1に示すように、急冷薄帯製造装置1は、磁石材料を収納し得る筒体2と、該筒体2に対し図中矢印A方向に回転する冷却ロール5とを備えている。筒体2の下端には、磁石材料の溶湯を射出するノズル（オリフィス）3が形成されている。

【0030】また、筒体2のノズル3近傍の外周には、加熱用のコイル4が配置され、このコイル4に例えば高周波を印加することにより、筒体2内を加熱（誘導加熱）し、筒体2内の磁石材料を溶融状態にする。

【0031】冷却ロール5は、基部51と、ロール周面を形成する表面層52とで構成されている。基部51は、例えば銅または銅系合金のような熱伝導率の高い金属材料で構成されているのが好ましく、表面層52は、基部51と同等の熱伝導率を有する金属材料か、または基部51より熱伝導率が低い金属材料で構成されているのが好ましい。これにより、急冷薄帯8のロール面81側とフリー面（冷却ロール5と接触しない側の面）82側との冷却速度の差をより小さくすることができ、結晶粒径の均一化を図ることができる。

【0032】このような急冷薄帯製造装置1は、チャンバー（図示せず）内に設置され、該チャンバー内に不活性ガスやその他の雰囲気ガスが充填された状態で作動する。特に、急冷薄帯8の酸化を防止するために、雰囲気ガスは、不活性ガスであるのが好ましい。不活性ガスとしては、例えばアルゴンガス、ヘリウムガス、窒素ガス等が挙げられるが、特にヘリウムガスが好ましい。その理由は、後述する。

【0033】急冷薄帯製造装置1では、筒体2内に磁石材料を入れ、コイル4により加熱して溶融し、その溶湯6をノズル3から射出すると、図2に示すように、溶湯6は、冷却ロール5の周面53に衝突し、パドル（湯溜り）7を形成した後、回転する冷却ロール5の周面53

に引きずられつつ急速に冷却されて凝固し、急冷薄帯8が連続的または断続的に形成される。このようにして形成された急冷薄帯8は、やがて、そのロール面81が周面53から離れ、図1中の矢印B方向に進行する。なお、図2中、溶湯の凝固界面71を点線で示す。

【0034】冷却ロール5の周速度は、合金溶湯の組成、周面53の状態等によりその好適な範囲が異なるが、通常、1～60m/秒であるのが好ましく、5～40m/秒であるのがより好ましい。冷却ロール5の周速度が遅すぎると、結晶粒径が増大し、逆に冷却ロール5の周速度が速すぎると、非晶質となり、いずれの場合にも、磁気特性が低下する。

【0035】このような急冷薄帯製造装置1を用いた急冷薄帯の製造においては、冷却ロール5の回転に起因して、パドル7の周辺（溶湯6が周面53に衝突した部位）に雰囲気ガスのガス流10が発生する。本発明では、このガス流10のレイノルズ数(Re)を1000以下とし、好ましくは900以下とし、より好ましくは10～700程度とする。

【0036】レイノルズ数を前記上限値以下とすることにより、パドル7周辺のガス流（ガス粘性流）10が図3に示すような状態になると推定され、冷却ロール5の周面53と急冷薄帯8のロール面81との間へのガス流の侵入が抑制され、ロール面81への巨大ディンプル9の形成が防止または抑制されるものと考えられる。これにより、急冷薄帯8は、速い冷却速度で冷却され、結晶粒の粗大化が防止され、よって、磁気特性（磁束密度、保磁力、角型性等）が向上する。

【0037】これに対し、前記レイノルズ数が前記上限値を超えると、パドル7周辺のガス流（ガス粘性流）10が、図4に示すように乱れ（うず流）を生じ、冷却ロール5の周面53と急冷薄帯8のロール面81との間に侵入し、これが原因でロール面81に巨大ディンプル9が形成されるものと考えられる。これにより、周面53

$$Re = \left[ \frac{v \cdot w \cdot P}{R \cdot T} \right] \cdot \left[ \frac{M}{\eta} \right] \quad \dots \quad II$$

【0045】ここで、式(II)中、Mは雰囲気ガスの分子量、ηは雰囲気ガスの粘性係数、Tは雰囲気ガスの温度[K]、Pは雰囲気ガスの圧力[Pa]、Rは気体定数である。

【0046】なお、雰囲気ガスが不活性ガスである場合、そのガスの種類によって前記レイノルズ数は変わる。これは他のパラメータが全く同一でも、式(II)中のM/ηが異なるためである。例えばアルゴンガスとヘリウムガスを比較すると、アルゴンガスのM/ηはほぼ1800であり、ヘリウムガスのM/ηはほぼ200であり、M/ηはヘリウムガスの方が圧倒的に小さい。従って、ヘリウムガスを用いることにより、レイノルズ数

との接触不良が生じ、熱伝達が阻害され、冷却速度が低下するので、急冷薄帯8は、巨大ディンプル9の部分において、結晶粒の粗大化が生じ、磁気特性（磁束密度、保磁力、角型性等）が低下する。

【0038】また、急冷薄帯8の巨大ディンプル9の部分から得られた磁石粉末を用いてボンド磁石を製造した場合、そのような磁石粉末は、結合樹脂との結合性（結合樹脂の濡れ性）が悪く、そのため、このボンド磁石は、機械的強度が低く、熱安定性（耐熱性）、耐食性が劣るものとなるが、本発明のように、巨大ディンプル9の発生が抑制された場合、このような問題が解消され、高機械的強度で、耐熱性、耐食性に優れたボンド磁石が得られる。

【0039】次に、レイノルズ数の定義について説明する。

【0040】本明細書におけるレイノルズ数(Re)は、物体の代表寸法として急冷薄帯8の幅（パドル7の幅）を考慮した値であり、次式(I)で表わされる。

【0041】

【数1】

$$Re = \frac{v \cdot w}{\nu} \quad \dots \quad I$$

【0042】ここで、式(I)中、vは雰囲気ガス（ガス流10）の流速、wは雰囲気ガスを遮る物体である急冷薄帯8（＝パドル7）の幅、νは雰囲気ガスの動粘性係数である。νは例えば流れの可視化により求めることができる。

【0043】さらに、雰囲気ガスを理想気体近似すること等から、レイノルズ数(Re)は、次式(II)で表わすことができる。

【0044】

【数2】

を小さくし易いという利点を有している。換言すれば、雰囲気ガスとしてヘリウムガスを用いることにより、レイノルズ数を1000以下とする上で、他の条件の許容範囲をより広くとること（例えば、式(II)中のv、w、Pをより大きく設定すること）ができるという利点がある。

【0047】ところで、急冷薄帯製造装置1においては、冷却ロール5自体の寸法精度（真円度）や、冷却ロール5の軸受けに対する取り付け精度等から、冷却ロール5が回転するに際し、図5に示すように、若干の偏心（軸振れ）が生じる。この偏心が大きいと、パドル7における溶融合金の表面や凝固界面71が振動し、得られ

た急冷薄帯8の寸法(幅 $w$ 、厚さ $t$ )に変動が生じたり、急冷薄帯8のロール面81が冷却ロール5の周面53と接触している時間に変動が生じたりする。さらに、巨大ディンプルの発生率も高まる。その結果、急冷薄帯8の冷却速度等が変動し、磁気特性にバラツキが生じる。そして、このような急冷薄帯8から得られた磁石粉末やそれを用いたボンド磁石は、磁気特性が低下する。

【0048】このようなことを防止するために、本発明では、冷却ロール5の回転に伴う冷却ロール5の周面53の最大偏心量 $\Delta R$ (図5参照)を、得られる急冷薄帯8の平均厚さ $t$ の2倍以下とするのが好ましく、1.5倍以下とするのがより好ましく、1倍以下とするのがさらに好ましい。これにより、得られた急冷薄帯8の磁気特性をより均一にすることができる。そして、これより製造されたボンド磁石の磁気特性を高めることができる。特に、本発明では、このような最大偏心量 $\Delta R$ を規定することと、前述したレイノルズ数を規定することとの相乗効果により、優れた磁気特性を発揮するものである。

【0049】ここで、最大偏心量 $\Delta R$ の下限値は、特に限定されないが、冷却ロール5の周面53の加工精度の限界や、冷却ロール5を支持する軸受けの精度の限界から、 $0.1\mu\text{m}$ 程度とすることができる。

【0050】なお、最大偏心量 $\Delta R$ は、例えば、レーザ変位計、静電式変位計、精密ゲージ等の精密寸法測定機器により測定することができる。

【0051】本発明における磁石材料としては、R(ただし、Rは、Yを含む希土類元素のうちの少なくとも1種)を含む合金、特にR(ただし、Rは、Yを含む希土類元素のうちの少なくとも1種)とTM(ただし、TMは、遷移金属のうちの少なくとも1種)とBとを含む合金のような希土類磁石材料が挙げられ、次の[1]～[4]の組成のものが好ましい。

【0052】[1] Smを主とする希土類元素と、Coを主とする遷移金属とを基本成分とするもの(以下、Sm-Co系合金と言う)。

【0053】[2] R(ただし、RはYを含む希土類元素のうちの少なくとも1種)と、Feを主とする遷移金属と、Bとを基本成分とするもの(以下、R-Fe-B系合金と言う)。

【0054】[3] Smを主とする希土類元素と、Feを主とする遷移金属と、Nを主とする格子間元素とを基本成分とするもの(以下、Sm-Fe-N系合金と言う)。

【0055】[4] R(ただし、RはYを含む希土類元素のうちの少なくとも1種)とFe等の遷移金属とを基本成分とし、ナノメートルレベルで磁性相を有するもの(ナノ結晶磁石)。

【0056】Sm-Co系合金の代表的なものとしては、 $\text{SmCo}_5$ 、 $\text{Sm}_2\text{TM}_{17}$ (ただしTMは、遷

移金属)が挙げられる。

【0057】R-Fe-B系合金の代表的なものとしては、Nd-Fe-B系合金、Pr-Fe-B系合金、Nd-Pr-Fe-B系合金、Ce-Nd-Fe-B系合金、Ce-Pr-Nd-Fe-B系合金、これらにおけるFeの一部をCo、Ni等の他の遷移金属で置換したもの等が挙げられる。

【0058】Sm-Fe-N系合金の代表的なものとしては、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 合金を窒化して作製した $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ が挙げられる。

【0059】前記希土類元素としては、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、ミッシュメタルが挙げられ、これらを1種または2種以上含むことができる。また、前記遷移金属としては、Fe、Co、Ni等が挙げられ、これらを1種または2種以上含むことができる。また、磁気特性を向上させるために、磁石材料中には、必要に応じ、B、Al、Cu、Ga、Si、Ti、V、Ta、Zr、Nb、Mo、Hf、Ag、Zn、P、Ge等を含有することもできる。

【0060】以上のような製造方法により得られる本発明の急冷薄帯(薄帯状の磁石材料)8は、ロール面81において、巨大ディンプル9が存在していないか、または存在していても、その面積率は小さい。すなわち、ロール面81において、面積が $2000\mu\text{m}^2$ 以上の巨大ディンプル9の占める面積率が好ましくは8%以下であり、より好ましくは5%以下であり、さらに好ましくは3%以下である。

【0061】また、急冷薄帯8は、面積が $2000\mu\text{m}^2$ 以上の巨大ディンプル9以外の部分における平均結晶粒径が50nm以下であるのが好ましく、30nm以下であるのがより好ましい。これにより、優れた磁気特性が発揮される。

【0062】急冷薄帯8の平均厚さ $t$ は、特に限定されないが、 $10\sim 50\mu\text{m}$ 程度が好ましく、 $15\sim 40\mu\text{m}$ 程度がより好ましい。この平均厚さ $t$ が大きすぎると、結晶粒の粗大化が顕著となり、磁気特性が劣化することがあり、また、小さすぎると、生産性が悪くなる。

【0063】以上のような急冷薄帯8を粉碎することにより、本発明の粉末状の磁石材料(磁石粉末)が得られる。

【0064】粉碎の方法は、特に限定されず、例えばボールミル、振動ミル、ジェットミル、ピンミル等の各種粉碎装置、破砕装置を用いて行うことができる。この場合、粉碎は、酸化を防止するために、真空または減圧状態下(例えば $1\times 10^{-1}\sim 1\times 10^{-6}$  Torr)、あるいは窒素ガス、アルゴンガス、ヘリウムガス等の不活性ガス中のような、非酸化性雰囲気で行うこともできる。

【0065】このような磁石粉末は、同一組成のもの

みならず、異なる 2 種以上の組成の磁石粉末を混合したものでもよい。例えば、前記 [1] ~ [4] の組成のものうち、少なくとも 2 種を混合したものが挙げられる。この場合、混合する各磁石粉末の利点を併有することができ、より優れた磁気特性を容易に得ることができる。

【0066】また、磁石粉末の平均粒径は、特に限定されないが、後述するボンド磁石を製造用のものの場合、 $0.5 \sim 60 \mu\text{m}$  程度が好ましく、 $1 \sim 40 \mu\text{m}$  程度がより好ましい。また、後述するような少量の結合樹脂で成形時の良好な成形性を得るために、磁石粉末の粒径分布は、ある程度分散されている（バラツキがある）のが好ましい。これにより、得られたボンド磁石の空隙率を低減することができ、ボンド磁石の機械的強度をより高め、磁気特性をさらに向上することができる。

【0067】なお、異なる 2 種以上の組成の磁石粉末を混合したものの場合、混合する磁石粉末の組成毎に、その平均粒径が異なってもよい。また、このような混合粉末の場合、異なる 2 種以上の組成の磁石粉末のうちの少なくとも 1 種が前述した本発明の方法により製造されたものであればよい。

【0068】また、本発明の粉末状の磁石材料は、ボンド磁石の製造に用いるものに限定されず、例えば、焼結磁石の製造に用いるものであってもよい。

【0069】次に、本発明のボンド磁石について説明する。

【0070】本発明のボンド磁石は、前述の磁石粉末を結合樹脂で結合してなるものである。

【0071】結合樹脂（バインダー）としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂のいずれでもよい。

【0072】熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリアミド（例：ナイロン 6、ナイロン 46、ナイロン 66、ナイロン 610、ナイロン 612、ナイロン 11、ナイロン 12、ナイロン 6-12、ナイロン 6-66）、熱可塑性ポリイミド、芳香族ポリエステル等の液晶ポリマー、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンサルファイド、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体等のポリオレフィン、変性ポリオレフィン、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリエーテル、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルイミド、ポリアセタール等、またはこれらを主とする共重合体、ブレンド体、ポリマーアロイ等が挙げられ、これらのうちの 1 種または 2 種以上を混合して用いることができる。

【0073】これらのうちでも、成形性が特に優れており、機械的強度が高いことから、ポリアミド、耐熱性向上の点から、液晶ポリマー、ポリフェニレンサルファイドを主とするものが好ましい。また、これらの熱可塑性樹脂は、磁石粉末との混練性にも優れている。

【0074】このような熱可塑性樹脂は、その種類、共重合化等により、例えば成形性を重視したものや、耐熱性、機械的強度を重視したものというように、広範囲の選択が可能となるという利点がある。

【0075】一方、熱硬化性樹脂としては、例えば、ビスフェノール型、ノボラック型、ナフタレン系等の各種エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル（不飽和ポリエステル）樹脂、ポリイミド樹脂、シリコーン樹脂、ポリウレタン樹脂等が挙げられ、これらのうちの 1 種または 2 種以上を混合して用いることができる。

【0076】これらのうちでも、成形性が特に優れており、機械的強度が高く、耐熱性に優れるという点から、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、シリコーン樹脂が好ましく、エポキシ樹脂が特に好ましい。また、これらの熱硬化性樹脂は、磁石粉末との混練性、混練の均一性にも優れている。

【0077】なお、使用される熱硬化性樹脂（未硬化）は、室温で液状のものでも、固形（粉末状）のものでもよい。

【0078】このような本発明のボンド磁石は、例えば次のようにして製造される。磁石粉末と、結合樹脂と、必要に応じ添加剤（酸化防止剤、潤滑剤等）とを含むボンド磁石用組成物（コンパウンド）を製造し、このボンド磁石用組成物を用いて、圧縮成形、押出成形、射出成形等の方法により、磁場中または無磁場中で所望の磁石形状に成形する。結合樹脂が熱硬化性樹脂の場合には、成形後、加熱等によりそれを硬化する。

【0079】ボンド磁石中の磁石粉末の含有量は、 $82 \sim 99.5 \text{ wt}\%$  程度であるのが好ましく、 $90 \sim 99.9 \text{ wt}\%$  程度であるのがより好ましい。特に、ボンド磁石が圧縮成形により製造されたものの場合には、磁石粉末の含有量は、 $93 \sim 99.5 \text{ wt}\%$  程度であるのが好ましく、 $95 \sim 99.9 \text{ wt}\%$  程度であるのがより好ましい。

【0080】磁石粉末の含有量が少なすぎると、磁気特性（特に磁気エネルギー積）の向上が図れず、また、磁石粉末の含有量が多すぎると、相対的に結合樹脂の含有量が少なくなり、成形性が低下する。

【0081】このような本発明のボンド磁石は、その原材料となる前述した急冷薄帯 8 の特性や、ボンド磁石の製造条件、ボンド磁石中に含まれる磁石粉末の含有量の多さ等から、優れた磁気特性を発揮する。

【0082】すなわち、本発明のボンド磁石は、保磁力  $iH_c$  が好ましくは  $0.35 \text{ MA/m}$  以上、より好ましくは  $0.50 \text{ MA/m}$  以上である。

【0083】本発明のボンド磁石、特に無磁場中で成形されたボンド磁石は、磁気エネルギー積  $(BH)_{\text{max}}$  が好ましくは  $50 \text{ kJ/m}^3$  以上、より好ましくは  $70 \text{ kJ/m}^3$  以上である。

【0084】本発明のボンド磁石の形状、寸法等は特に

限定されず、例えば、形状に関しては、例えば、円柱状、角柱状、円筒状（リング状）、円弧状、平板状、湾曲板状等のあらゆる形状のものが可能であり、その大きさも、大型のものから超小型のものまであらゆる大きさのものが可能である。

#### 【0085】

【実施例】以下、本発明の具体的実施例について説明する。

【0086】（実施例1）純度99.9%以上のNd、Fe、Coの各金属と、Fe-B合金とを原料として、合金組成がNd<sub>13</sub>Fe<sub>81</sub>Co<sub>6</sub>B<sub>5.5</sub>（組成A）で表わされる母合金インゴットを铸造した。このインゴットから約15gのサンプルを切り出した。

【0087】図1に示す構成の急冷薄帯製造装置1を用意し、底部にノズル（円孔オリフィス）を設けた石英管内に前記サンプルを入れた。急冷薄帯製造装置1が収納されているチャンバー内を脱気してから不活性ガス（アルゴンガス、ヘリウムガス）を導入し、所望の温度Tおよび圧力Pの雰囲気とした。

【0088】その後、石英管内のインゴットサンプルを高周波誘導加熱により溶融し、この溶湯を、1500rpm（周速度：15.7m/秒）で回転する直径200mm、幅20mmの冷却ロールの周面に向けて、石英管の内圧と雰囲気圧との差圧により噴射し、組成Aの合金の急冷薄帯を得た。なお、冷却ロールの表面層は、銅製（厚さ5mm）のものとした。

【0089】また、冷却ロールの回転による冷却ロール周面の最大偏心量 $\Delta R$ をレーザ変位計により測定したところ、 $\Delta R=10\mu\text{m}$ であった。

【0090】またこの時、チャンバー内にセットした温度センサー（熱電対）により雰囲気温度Tを測定した。

【0091】オリフィス径および噴射圧（差圧）等の条件を種々変更して、下記表1に示す7つの試料A1～A7の急冷薄帯を製造した。また、 $\Delta R=50\mu\text{m}$ （ $>2t$ ）である以外は同様の冷却ロールに交換し、試料A6とほぼ同様の条件で試料A8の急冷薄帯を製造した。各試料について、パドル付近の雰囲気ガスのガス流のレイノルズ数は、表1に示す通りである。

【0092】なお、各急冷薄帯の幅wおよび厚さtは、それぞれ、マイクロ스코プにより1試料につき5点以上の測定点で測定し、これを平均した値とした。

【0093】作製した試料A1～A8の急冷薄帯に関する各数値を下記表1に示す。

【0094】また、各急冷薄帯について、ロール面を走査型電子顕微鏡（SEM）で観察し、さらに画像解析を行った。画像解析の結果より、ロール面に対する面積2000 $\mu\text{m}^2$ 以上の巨大ディンプル（以下単に「巨大ディンプル」と言う）の占める面積率を算出した。その結果も併せて表1に示す。

#### 【0095】

【表1】

試料 No.	雰囲気ガス種	雰囲気ガス温度T (°C)	雰囲気圧P (kPa)	急冷薄帯の幅w (mm)	急冷薄帯の厚さt ( $\mu\text{m}$ )	レイノルズ数 Re	巨大ディンプルの占める面積率 (%)	備考
A1	ヘリウム	25	53.3	0.9	26.3	84	0	本発明
A2	ヘリウム	19	88.0	2.0	30.8	308	0	本発明
A3	アルゴン	23	56.9	0.8	25.3	700	0	本発明
A4	アルゴン	20	48.0	1.2	27.7	885	2.5	本発明
A5	アルゴン	17	65.1	1.0	26.8	1000	5.0	本発明
A6	アルゴン	27	88.0	0.8	25.9	1082	8.7	比較例
A7	アルゴン	21	66.7	2.0	31.0	2050	15.3	比較例
A8	アルゴン	18	87.0	0.8	24.8	1080	9.5	比較例

【0096】表1からわかるように、レイノルズ数が1000以下である試料A1～A5の急冷薄帯については、いずれも巨大ディンプルの占める面積率は5%以下であった。特に、レイノルズ数が900以下の場合には、さらにその値が低く、レイノルズ数が700以下の場合には、巨大ディンプルは全く発生していなかった。

【0097】これに対し、レイノルズ数が1000を超える試料A6～A8では、巨大ディンプルの占める面積

率が8%を超えた。この場合、冷却ロール周面の最大偏心量 $\Delta R$ が大きい試料A8は、試料A6に比べ、巨大ディンプルの占める面積率がさらに増大している。

【0098】次に、試料A1～A8の各急冷薄帯について、TEMによる組織観察結果から、画像処理などの方法により、巨大ディンプル以外の部分における平均結晶粒径を測定した。また、磁気特性（保磁力 $iH_c$ 、磁気エネルギー積 $(BH)_{\text{max}}$ ）を、VSMにより測定した。これ

らの結果を下記表2に示す。

【表2】

【0099】

試料 No.	レイノルズ数 Re	巨大ディンプル の占める面積率 (%)	平均結晶粒径 (nm)	iHc (MA/m)	(BH) max (kJ/m <sup>3</sup> )	備 考
A1	84	0	19	0.90	132.0	本発明
A2	308	0	24	0.88	131.8	本発明
A3	700	0	22	0.86	137.8	本発明
A4	885	2.5	26	0.84	127.8	本発明
A5	1000	5.0	29	0.79	126.5	本発明
A6	1082	8.7	32	0.48	65.6	比較例
A7	2050	15.3	35	0.38	50.3	比較例
A8	1080	9.5	30	0.43	59.8	比較例

【0100】表2からわかるように、レイノルズ数が1000以下である試料A1～A5の急冷薄帯については、いずれも、高い磁気特性が得られている。特に、レイノルズ数が900以下の場合にはさらにその値が高く、レイノルズ数が700以下の場合には、保磁力が0.85MA/m以上、磁気エネルギー積(BH)<sub>max</sub>が130kJ/m<sup>3</sup>以上と、極めて高い値を示した。

【0101】これに対し、レイノルズ数が1000を超える試料A6～A8は、試料A1～A5に比べ、磁気特性が劣るものであった。この場合、冷却ロール周面の最大偏心量ΔRが大きい試料A8は、試料A6に比べ、磁気特性がさらに低下している。

【0102】(実施例2)表3に示す組成B、CおよびDのインゴットを铸造し、これらのインゴットから切り出したサンプルを用いた以外は、実施例1と同様(ただし、ΔR=15μm)にして、11種の急冷薄帯を製造した。

【0103】

【表3】

組成B	Nd <sub>40</sub> Fe <sub>50</sub> Co <sub>10</sub> B <sub>10</sub>
組成C	Nd <sub>10</sub> Pr <sub>20</sub> Fe <sub>50</sub> Nb <sub>10</sub> B <sub>10</sub>
組成D	Nd <sub>50</sub> Fe <sub>40</sub> Ga <sub>10</sub> B <sub>10</sub>

【0104】これらについて、前記と同様にして、レイノルズ数および巨大ディンプルの占める面積率を算出した。その値を下記表4に示す。

【0105】また、各急冷薄帯の幅wは、0.7～2.5mmの範囲内、厚さは、20～35μmの範囲内であり、巨大ディンプル以外の部分における平均結晶粒径は、15～30nmの範囲内であった。

【0106】なお、レイノルズ数が400以下のものは、雰囲気ガスとしてヘリウムガスを、レイノルズ数が400を超えるものは、雰囲気ガスとしてヘアルゴンガスをを用いた。

【0107】次に、各急冷薄帯を粉碎機(ライカイ機)により不活性ガス中で粉碎して、平均粒径が15μm(組成B)、20μm(組成C)、18μm(組成D)の磁石粉末とし、この磁石粉末のうちの1種または2種以上(組み合わせは表5中に記載)と、エポキシ樹脂1.9±0.1wt%と、ヒドラジン系酸化防止剤0.15wt%と、ステアリン酸塩(潤滑剤)0.05wt%とを混合し、この混合物を十分に混練(120℃×10分)して、ボンド磁石用組成物(コンパウンド)を作製した。

【0108】次いで、このコンパウンドを粉碎して粒状とし、この粒状物を秤量してプレス装置の金型内に充填し、材料温度130℃、圧力6ton/cm<sup>2</sup>で圧縮成形(無磁場中)して成形体を得た。離型後、エポキシ樹脂を加熱硬化させて、直径10mm×高さ7mmの円柱状ボンド磁石(試料B1～B22)を得た。

【0109】ここで、試料B1～B11は、1種の磁石粉末を用いたもの、試料B12～B22は、試料B1～B11で用いた磁石粉末の2種以上の混合物(混合粉末)を用いたものである。

【0110】試料B1～B22のボンド磁石中の磁石粉末の含有量(混合粉末の場合は、その合計の含有量)は、97.9～98.3wt%であった。

【0111】得られたボンド磁石の磁気特性(保磁力iHc、磁気エネルギー積(BH)<sub>max</sub>)を直流自記磁束計により最大印加磁場2MA/mにて測定した。

【0112】さらに、これらのボンド磁石について、60℃×95%RHで500時間までの恒温恒湿試験を行

い、耐食性を調べた。この耐食性は、ボンド磁石表面における錆の発生の有無を目視により判別し、錆の発生が全く無かったものを○印、錆の発生が若干認められたものを△印、錆の発生が顕著に認められたものを×印として評価した。

【0113】試料B1～B22の各ボンド磁石について、磁気特性および耐食性の評価結果を、それぞれ下記

表4および表5に示す。なお、試料B1～B11の各ボンド磁石については、急冷薄帯製造時のレイノルズ数および巨大ディンプルの占める面積率を、下記表4に併せて示す。

【0114】

【表4】

試料 No.	組 成	レイノルズ数 Re	巨大ディンプル の占める面積率 (%)	iHc (MA/m)	(BH) max (kJ/m³)	耐食性	備 考
B1	B	72	0	0.42	75.1	○	本発明
B2		355	0	0.39	73.6	○	本発明
B3		860	2.3	0.38	71.5	○	本発明
B4		1132	9.8	0.10	25.3	△～×	比較例
B5	C	135	0	1.06	84.2	○	本発明
B6		556	0	1.02	81.3	○	本発明
B7		1325	12.6	0.71	45.1	×	比較例
B8		2118	18.3	0.55	40.2	×	比較例
B9	D	223	0	0.72	120.3	○	本発明
B10		789	0.7	0.70	118.5	○	本発明
B11		1229	10.5	0.33	60.1	×	比較例

【0115】

【表5】

試料 No.	組 成	磁石粉末の組み合わせ	iHc (MA/m)	(BH) max (kJ/m³)	耐食性	備 考
B12	B + D 重量比 =1:1	試料 No. B1+B9	0.57	101.2	○	本発明
B13		試料 No. B2+B9	0.54	100.6	○	本発明
B14		試料 No. B3+B10	0.50	98.1	○	本発明
B15		試料 No. B4+B11	0.20	38.9	×	比較例
B16	C + D 重量比 =1:2	試料 No. B5+B9	0.87	107.8	○	本発明
B17		試料 No. B6+B9	0.84	106.7	○	本発明
B18		試料 No. B5+B10	0.86	105.4	○	本発明
B19		試料 No. B7+B11	0.53	49.2	×	比較例
B20	B+C+D 重量比 =1:1:1	試料 No. B1+B5+B9	0.75	105.8	○	本発明
B21		試料 No. B2+B6+B9	0.71	103.3	○	本発明
B22		試料 No. B4+B8+B11	0.21	40.5	×	比較例

【0116】表4および表5からわかるように、試料B1～B3、B5～B7、B9、B10、B12～B1

50

4、B16～B18、B20、B21の本発明のボンド磁石は、いずれも、保磁力iHc 0.35MA/m以上、磁気



エネルギー積(BH)<sub>max</sub> が50kJ/m<sup>3</sup> 以上と、優れた磁気特性を有しているとともに、耐食性も優れている。

【0117】特に、混合粉末を用いた試料B12～B14、B16～B18、B20、B21は、より優れた磁気特性が得られている。

【0118】これに対し、試料B4、B8、B11、B15、B19、B22のボンド磁石は、磁気特性および耐食性が劣るものであった。

【0119】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、急冷薄帯において巨大ディンプルの発生を抑制し、磁気特性の均一化を図ることができ、よって、高機械的強度で優れた磁気特性および耐食性を有する永久磁石を提供することができる。また、このような磁石を容易に製造することができる。

【0120】特に、冷却ロール周面の最大偏心量を小さくすることにより、急冷薄帯の磁気特性のバラツキを有効に防止し、より優れた磁気特性を持つ永久磁石を提供することができる。

【0121】また、本発明では、このような磁石を容易に製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の磁石材料を製造する装置（急冷薄帯製造装置）の構成例を示す斜視図である。

【図2】図1に示す装置における溶湯の冷却ロールへの

衝突部位付近の状態を示す断面側面図である。

【図3】パドル周辺のガス流（低レイノルズ数）の状態を模式的に示す平面図である。

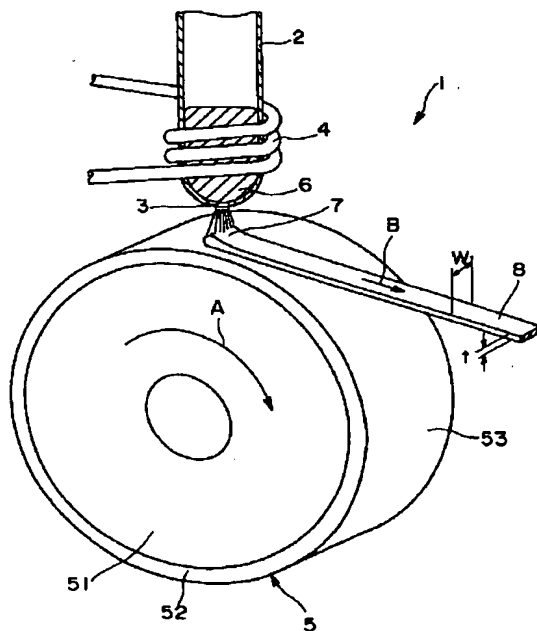
【図4】パドル周辺のガス流（高レイノルズ数）の状態を模式的に示す平面図である。

【図5】冷却ロールの回転に伴う冷却ロール周面の最大偏心量を示す側面図である。

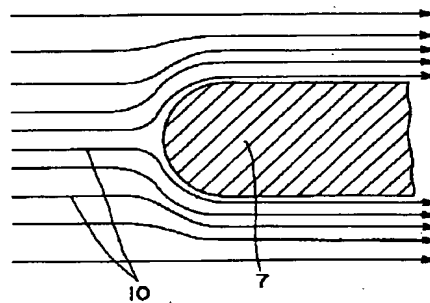
【符号の説明】

- |    |          |
|----|----------|
| 1  | 急冷薄帯製造装置 |
| 2  | 筒体       |
| 3  | ノズル      |
| 4  | コイル      |
| 5  | 冷却ロール    |
| 51 | 基部       |
| 52 | 表面層      |
| 53 | 周面       |
| 6  | 溶湯       |
| 7  | パドル      |
| 71 | 凝固界面     |
| 8  | 急冷薄帯     |
| 81 | ロール面     |
| 82 | フリー面     |
| 9  | 巨大ディンプル  |
| 10 | ガス流      |

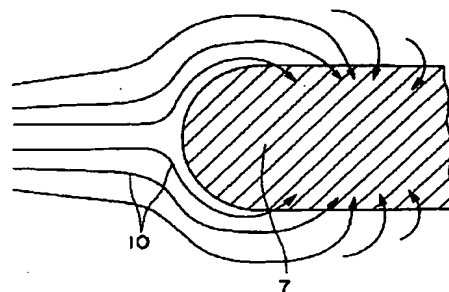
【図1】



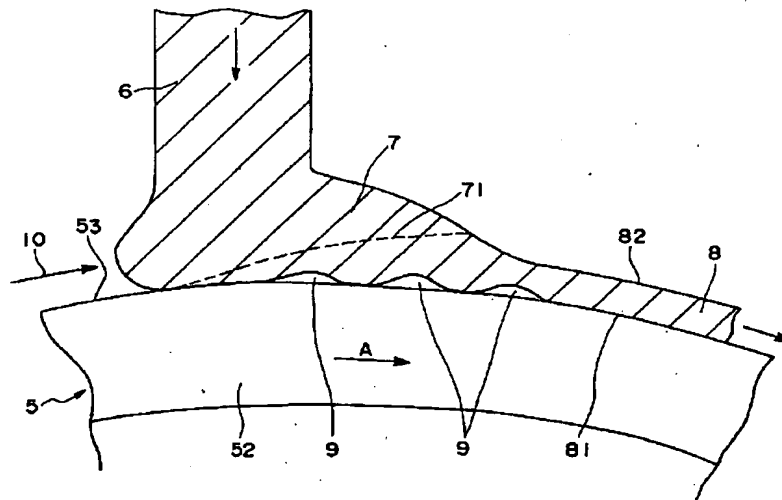
【図3】



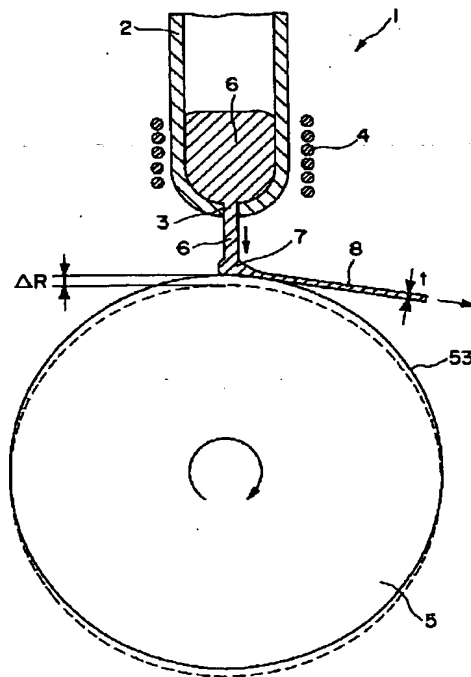
【図4】



【図 2】



【図 5】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

H 0 1 F 1/06

1/08

// B 2 2 F 1/00

識別記号

F I

B 2 2 F 1/00

Y

C 2 2 C 38/00

3 0 3 D

H 0 1 F 1/06

A

(12)

特開平 1 1 - 2 7 7 1 8 8

C 2 2 C 38/00

3 0 3

1/08

A

)

)